

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To

Commissioner
 US Department of Commerce
 United States Patent and Trademark
 Office, PCT
 2011 South Clark Place Room
 CP2/5C24
 Arlington, VA 22202
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 03 November 2000 (03.11.00)	
International application No. PCT/EP00/02484	Applicant's or agent's file reference LeA 33367-WO
International filing date (day/month/year) 21 March 2000 (21.03.00)	Priority date (day/month/year) 01 April 1999 (01.04.99)
Applicant BLUM, Harald et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

04 October 2000 (04.10.00)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO
 34, chemin des Colombettes
 1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Zakaria EL KHODARY

Telephone No.: (41-22) 336.83.38

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts LeA 33367-WO	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 02484	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 21/03/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 01/04/1999
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 03 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.



A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDEGEGENSTANDES

IPK 7 C08G18/10 C08G18/12 C08G18/28 C09D175/04 C08G18/44

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08G C09D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 886 226 A (ASAI KIYOTSUGU ET AL) 27. Mai 1975 (1975-05-27) Spalte 2, Zeile 6 -Spalte 4, Zeile 15 Beispiele 1,4; Tabelle 1 ---	1-3,7, 11,13, 18,19
X	US 4 582 873 A (GAA PETER C ET AL) 15. April 1986 (1986-04-15) Spalte 3, Zeile 34 -Spalte 4, Zeile 51 Spalte 25, Zeile 14 -Spalte 27, Zeile 45 Beispiel 1A ---	1-3,9, 13,19
A	GB 1 474 105 A (COMMW SCIENTIFIC IND RES ORG) 18. Mai 1977 (1977-05-18) Seite 3, Zeile 24 -Seite 6, Zeile 28 --- -/--	1,17,22

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. Juli 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

04/08/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Neugebauer, U



C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES INC) 25. März 1998 (1998-03-25) Seite 2, Zeile 5 -Seite 3, Zeile 36 Beispiele 1,6,7,17 -----	1,14,17, 19



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

Information on patent family members

T/EP 00/02484

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3886226	A	27-05-1975	JP 908281 C	08-05-1978
			JP 48084899 A	10-11-1973
			JP 52012740 B	09-04-1977
			JP 1044734 C	30-04-1981
			JP 48097817 A	13-12-1973
			JP 55039587 B	13-10-1980
			JP 946268 C	30-03-1979
			JP 49078750 A	30-07-1974
			JP 53028945 B	17-08-1978
			CA 1015488 A	09-08-1977
			DE 2307794 A	23-08-1973
US 4582873	A	15-04-1986	CA 1248679 A	10-01-1989
			DE 3583822 A	26-09-1991
			EP 0163214 A	04-12-1985
			JP 1805897 C	26-11-1993
			JP 5007407 B	28-01-1993
			JP 60255817 A	17-12-1985
GB 1474105	A	18-05-1977	BE 814725 A	02-09-1974
			CH 626218 A,B	13-11-1981
			DE 2421888 A	05-12-1974
			ES 426099 A	01-07-1976
			FR 2228886 A	06-12-1974
			IT 1012187 B	10-03-1977
			JP 50046996 A	26-04-1975
			NL 7406182 A,B,	12-11-1974
			ZA 7402665 A	30-04-1975
EP 0831108	A	25-03-1998	BR 9704796 A	22-12-1998
			JP 10204144 A	04-08-1998
			US 6001946 A	14-12-1999



2

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC. 28 MAY 2001

WIPO

PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT


(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts LeA 33367-WO PWE	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02484	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 21/03/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 01/04/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G18/10		
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
 - I ☒ Grundlage des Berichts
 - II ☐ Priorität
 - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
 - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 04/10/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 22.05.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Radke, M Tel. Nr. +49 89 2399 8677





I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-25 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-22 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbaren **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:



5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	4,6-8,11,12,14,16-22
	Nein: Ansprüche	1-3,5,9,10,13,15
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	4,6-8,11,12,14,16-22
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-22
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt



Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der
erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und
Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Zitierte Literatur

(a) Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: US-A-4 582 873

D2: GB-A-1 474 105

D3: EP-A-0 831 108

(b) In den folgenden Ausführungen wird Seite oder Spalte A, Zeile B bis C zitiert als A/B-C. Auch Leerzeilen werden als Zeilen gezählt.

2. Neuheit

Dokument **D1** beschreibt im Beispiel 1A die Herstellung von PU-Lösungen in NMP durch Reaktion von

- (a) Polyesterdiol (Tone 200),
Polyoxyethylenpolyol (Carbowax 1450; $1000 < MW < 4000$)
 - (b) Diisocyanat (Methylen-bis-4-cyclohexyldiisocyanat),
 - (c) 1,4-Butandiol,
 - (d) N-beta-Aminoethyl-gamma-aminopropyltrimethoxysilan sowie
 - (f) ggf. Dimethylolpropionsäure,
- und ihre anschließende Dispergierung in Wasser (s. 28/11-32; Tabelle 1, insbesondere Proben 7 und 9).

Daher ist der Gegenstand der **Ansprüche 1-3, 5, 9, 10, 13** (s. Probe 4 in Tabelle 1) **und 15** nicht neu.



3. Erfinderische Tätigkeit

- (a) Die Verwendung von Umsetzungsprodukten von monoaminfunktionellem Alkoxysilan mit Maleinsäurealkylestern bei der Herstellung von Polyurethanen ist bekannt aus **D3** (s. Anspruch 1 und Seite 5). Es war daher naheliegend, diese Produkte zur Herstellung der beanspruchten Polyurethanlösungen einzusetzen. Daher beruht der Gegenstand des **Anspruchs 14** nicht auf erfinderischer Tätigkeit.
- (b) Die Herstellung eines Polyurethan-Prepolymeren und dessen anschließende Umsetzung mit dem Silan (d) ist bekannt aus **D2**, wo in den Beispielen 1 bis 6 bereits ein Prepolymer eingesetzt wird. Die Zugabe des Kettenverlängerers (c) nach der Umsetzung des Prepolymeren mit dem Silan ist naheliegend im Hinblick auf Beispiel 1A von **D1**, wo auch der Kettenverlängerer Diethylentriamin zum Schluss zugegeben wird (s. Proben 1 bis 7).
Daher ist der Gegenstand der **Ansprüche 17 und 18** nicht erfinderisch.
- (c) Die Verwendung der Polyurethanlösungen gemäß den vorliegenden **Ansprüchen 19 bis 22** ist naheliegend, da
- einerseits **D1**, 1/19-38 solche Verwendungen der wässrigen Dispersionen offenbart und
 - andererseits **D2** dem Fachmann lehrt, dass zu diesem Zweck auch die Lösungen eingesetzt werden können (s. **D2**, Beispiele 1 bis 7).
- (d) Der Gegenstand der folgenden Ansprüche ist nicht erfinderisch, da deren zusätzlichen Merkmale wie folgt als bevorzugt offenbart sind:

Anspruch 4: D2, 5/9-13;

Anspruch 6: D2, 4/51;

Anspruch 7: D2, 4/56-58;

Anspruch 8: D1, 7/51.

- (e) Ob die zusätzlichen Merkmale der **Ansprüche 11, 12 und 16** zur erfinderischen Tätigkeit beitragen, erscheint zweifelhaft, da die auf 12/15-19, 13/3-5 und 14/3-7 behaupteten Vorteile nicht belegt sind.



Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Folgende Diskrepanzen zwischen den Ansprüchen und der Beschreibung wurden festgestellt:

- (a) Auf 11/16-17 hätte das Wort "vorzugsweise" gestrichen werden sollen (s. **Anspruch 1** auf 26/12- 13).
- (b) Im **Anspruch 12** ist ein Bereich von "0,1 bis 1,5 Gew. %" genannt, während in der Beschreibung auf 13/3 ein Bereich von "0,1 bis 4,5 Gew. %" erwähnt wird.

Die Ansprüche 1 und 12 werden daher nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, von der Beschreibung gestützt.



Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference LeA 33367-WO	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/02484	International filing date (day/month/year) 21 March 2000 (21.03.00)	Priority date (day/month/year) 01 April 1999 (01.04.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 18/10, 18/12, 18/28, C09D 175/04, C08G 18/44		
Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 04 October 2000 (04.10.00)	Date of completion of this report 22 May 2001 (22.05.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/02484

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments)

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-25, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages _____, filed with the letter of _____,
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 1-22, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. _____, filed with the letter of _____,
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	4, 6-8, 11, 12, 14, 16-22	YES
	Claims	1-3, 5, 9, 10, 13, 15	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	4, 6-8, 11, 12, 14, 16-22	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-22	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1. Citations

- (a) This report makes reference to the following documents:

D1: US-A-4 582 873

D2: GB-A-1 474 105

D3: EP-A-0 831 108.

- (b) In the following explanations, page or column A, lines B to C, is cited as A/B-C. Blank lines are also counted as lines.

2. Novelty

Example 1A of document **D1** describes the production of PU solutions in NMP by reacting

- (a) polyester diol (Tone 200)
polyoxyethylene polyol (Carbowax 1450; 1000 < MW < 4000)
- (b) diisocyanate (methylene-bis-4-cyclohexyl diisocyanate),
- (c) 1,4-butanediol,



- (d) N-beta-aminoethyl-gamma-aminopropyltrimethoxysilane and possibly
(f) dimethylolpropionic acid

and the subsequent dispersion of the above in water (see 28/11-32; Table 1, especially samples 7 and 9).

The subject matter of Claims 1-3, 5, 9, 10, 13 (see sample 4 in Table 1) and 15 is therefore not novel.

3. Inventive step

- (a) The use of reaction products of alkoxysilane having a monoamine function with maleic acid alkyl esters in the production of polyurethanes is known from **D3** (see Claim 1 and page 5). It was therefore obvious to use these products in the production of the claimed polyurethane solutions. The subject matter of Claim 14 consequently fails to involve an inventive step.
- (b) The production of a polyurethane prepolymer and its subsequent reaction with the silane (d) is known from **D2**, which in Examples 1 to 6 already uses a prepolymer. The addition of the chain extender (c) after the reaction of the prepolymer with the silane is obvious in light of Example 1A of **D1**, according to which the chain extender diethylene triamine is likewise added at the end (see samples 1 to 7).

The subject matter of Claims 17 and 18 is therefore not inventive.

- (c) The use of the polyurethane solutions as per current



Claims 19 to 22 is obvious since

- on the one hand **D1**, 1/19-38 discloses such uses of the aqueous dispersions and
- on the other hand **D2** teaches the person skilled in the art that these solutions can also be used for this purpose (see **D2**, Examples 1 to 7).

- (d) The subject matter of the following claims is not inventive because their additional features are already disclosed as follows:

Claim 4: D2, 5/9-13;

Claim 6: D2, 4/51;

Claim 7: D2, 4/56-58;

Claim 8: D1, 7/51.

- (e) It appears doubtful whether the additional features of Claims 11, 12 and 16 contribute an inventive step since the advantages claimed on 12/15-19, 13/3-5 and 14/3-7 have not been proven.



VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The following inconsistencies between the claims and the description have been noted:

- (a) On 11/16-17 the word "preferably" should have been deleted (see Claim 1 on 26/12-13).
- (b) Claim 12 mentions a range of "0.1 to 1.5 % by weight", whereas the description, 13/3, indicates a range of "0.1 to 4.5 % by weight".

Contrary to PCT Article 6, Claims 1 and 12 are therefore not supported by the description.



PCT

ORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C08G 18/10, 18/12, 18/28, C09D 175/04, C08G 18/44	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/59974 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 12. Oktober 2000 (12.10.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/02484 (22) Internationales Anmeldedatum: 21. März 2000 (21.03.00) (30) Prioritätsdaten: 199 14 879.1 1. April 1999 (01.04.99) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BLUM, Harald [DE/DE]; Paul-Klee-Strasse 42, D-51375 Leverkusen (DE). SCHÜTZE, Detlef-Ingo [DE/DE]; Roggendorfstrasse 51, D-51061 Köln (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(54) Title: POLYURETHANE SOLUTIONS CONTAINING ALKOXYSILANE STRUCTURAL UNITS		
(54) Bezeichnung: POLYURETHANLÖSUNGEN MIT ALKOXYSILANSTRUKTUREINHEITEN		
(57) Abstract		
The invention relates to polyurethane solutions containing alkoxyasilane structural units, methods for producing polyurethane solutions containing alkoxyasilane structural units and the use of polyurethane solutions containing alkoxyasilane structural units.		
(57) Zusammenfassung		
Die Erfindung betrifft Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten, Verfahren zur Herstellung Alkoxysilanstruktureinheiten enthaltender Polyurethanlösungen und die Verwendung Alkoxysilanstruktureinheiten enthaltender Polyurethanlösungen.		

LeA 33367

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten

5 Die Erfindung betrifft Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten, Verfahren zur Herstellung Alkoxysilanstruktureinheiten enthaltender Polyurethanlösungen und die Verwendung Alkoxysilanstruktureinheiten enthaltender Polyurethanlösungen.

10 Polyurethanlösungen sind seit langem bekannt, z.B. D. Diederich, Methoden der Organischen Chemie (Houben-Weyl), Band E 20, Georg Thieme Verlag, 1997 und dort zitierte Literatur.

15 Polyurethanlösungen sind in der Regel hochmolekulare Umsetzungsprodukte aus aliphatischen und/oder aromatischen Di- bzw. Polyisocyanaten mit di- bzw. trifunktionellen Polyolen und/oder Diaminen. Die Umsetzung der isocyanatfunktionellen mit den hydroxyl- und/oder aminofunktionellen Verbindungen erfolgt dabei zur Erzielung der gewünschten hohen Molekulargewichte nahe am Äquivalenzpunkt.

20 Um lösliche und gut verarbeitbare Produkte zu erhalten, muß bei Erreichen der gewünschten Molekulargewichte bzw. Viskositäten der Polyurethanlösungen die Kettenaufbaureaktion abgestoppt werden. Dies geschieht üblicherweise durch Zugabe niedermolekularer, reaktiver Verbindungen wie z.B. Monoamin (DE-A 2 633 293), Monoisocyanat oder Acetanhydrid. (DE-A 2 500 921, EP-A 129 396), durch Zugabe reaktiver monofunktioneller Alkohole wie Methanol oder durch
25 Zugabe anderer kettenabstoppend wirkender Verbindungen wie z.B. Butanonoxim (DE-A 3 142 706).

30 In der technischen Praxis wird dabei in der Regel ein gewisser Überschuß an Abstoppsreagenz zugegeben, um eine sichere Abstopfung zu gewährleisten. Dieser Überschuß kann sich jedoch negativ auf Beschichtungseigenschaften auswirken, was sich z.B. durch Geruchsbelästigung, durch Ausschwitzen, durch Haftungsprobleme

sowie durch Bildung von Fehlstellen im Film durch Blasen und Kraterbildung bemerkbar machen kann. Auch die Lagerstabilität solcher Lösungen kann dadurch beeinträchtigt werden. Überschüssiges freies Monoamin, Monoisocyanat oder auch überschüssiger reaktiver Monoalkohol kann durch schleichende Reaktion mit Urethan- oder Esterbindungen im Polymer, insbesondere während der in der Praxis unvermeidlichen Lagerzeiten, zu erheblichen Viskositätsänderungen, bis hin zu gravierenden Abbauerscheinungen, verbunden mit einem Verlust der Eigenschaften, führen.

Da Polyurethanlösungen in der Regel keine reaktiven Endgruppen mehr aufweisen, erfolgt nach der Applikation lediglich eine physikalische Trocknung. Eine chemische Vernetzung über reaktive Gruppen am Kettenende zur Ausbildung sehr hochmolekularer Polymerer mit verbessertem Eigenschaftsniveau ist so nicht mehr möglich.

Aus der DE-A 3 401 753 sind Polyurethanlösungen mit endständigen aromatischen Aminogruppen bekannt, die für eine spätere Vernetzungsreaktion zur Verfügung stehen. Dieses erfordert jedoch die nachträgliche Zugabe eines Reaktionspartners.

Die JP 0 8253 545 beschreibt vernetzbare Urethanharzzusammensetzungen, die Verbindungen mit zwei isocyanatreaktiven Gruppen und einer hydrolysierbaren Silylgruppe enthalten. Die Urethanharze enthalten ausschließlich seitenständig gebundene Silylgruppen. Dies führt zu vernetzten Klebstoffen oder Beschichtungen mit hoher Härte, jedoch nur geringer Elastizität bzw. Dehnfähigkeit. Verbindungen mit zwei isocyanatreaktiven Gruppen und einer hydrolysierbaren Gruppe sind zudem als Abstoppsreagenz ungeeignet.

Aufgabe der Erfindung war es daher, Polyurethanlösungen zur Verfügung zu stellen, die die genannten Nachteile nicht aufweisen. Es sollen insbesondere Polyurethanlösungen zur Verfügung gestellt werden, die Polyurethane mit hohen Molekulargewichten enthalten, sicher herstellbar und abstopfbar sind und die zudem bei der Ver-

wendung in Beschichtungen keine Probleme durch Geruchsbelästigung, Ausschwitzen, unzureichende Haftung oder nicht ausreichende Filmoptik verursachen. Dabei muß sichergestellt sein, daß sich eventuell zugesetzte überschüssige Mengen an Abstopper nicht negativ auf die Lagerstabilität der Lösung und auf die Eigenschaften der Beschichtung auswirken und auch keine gesundheitsschädlichen Auswirkung auf Verarbeiter und Anwender zu erwarten sind.

Überraschender Weise wurde nun gefunden, daß Polyurethanlösungen, die Verbindungen mit einer isocyanatreaktiven Gruppe und mindestens einer Alkoxysilangruppe als Abstopper eingebaut enthalten, die gestellten Anforderungen erfüllen. Überraschenderweise wurde darüber hinaus auch eine verbesserte Hydrolysebeständigkeit, eine sehr gute Haftung und ein besonders angenehmer Griff bei Beschichtungen auf Basis der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen gefunden. Überraschender Weise wurde auch gefunden, daß die erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen zur Herstellung hochwertiger Beschichtungen mit hoher Wasserdampfdurchlässigkeit, und einem damit verbundenen, ausgezeichneten Tragekomfort sehr gut geeignet sind. Die erfindungsgemäßen Beschichtungen vereinen dabei eine hohe Wasserdampfdurchlässigkeit mit einer sehr guten Wasserfestigkeit bzw. Naßehttheit und einer relativ niedrigen Wasserquellung.

Polyurethanlösungen, die eine Verbindung mit einer isocyanatreaktiven Gruppe und einer Alkoxysilangruppe als Abstopper und zusätzlich eine Verbindung mit mindestens zwei isocyanatreaktiven Gruppen und mindestens einer Alkoxysilanstruktureinheit in geringen Mengen eingebaut enthalten, führen überraschenderweise ebenfalls zu Beschichtungen, die die oben aufgeführten Anforderungen erfüllen und darüber hinaus sowohl eine ausgezeichnete Filmmechanik, insbesondere eine hoher Dehnfähigkeit und Elastizität, als auch gleichzeitig sehr hohe Schmelz- bzw. Erweichungstemperaturen aufweisen, was für viele Anwendungen, z.B. in der Textilbeschichtung, sehr vorteilhaft ist.

30

Polyurethanlösungen, die als Abstopper ein Asparaginsäureesterstruktureinheiten enthaltendes Umsetzungsprodukt einer Verbindung mit einer primären Aminogruppe und mindestens einer Alkoxysilangruppe mit einem Maleinsäuredialkylester enthalten, erfüllen überraschenderweise trotz der bekannten verringerten Reaktivität der Asparaginsäureesterstruktureinheiten ebenfalls die oben genannten Anforderungen. Sie weisen darüber hinaus den weiteren Vorteil auf, daß auch größere Mengen Abstopper, auch zu einem sehr frühen Reaktionszeitpunkt und auch ohne Anwesenheit von organischen Lösemitteln ohne die Gefahr der Bildung schwerlöslicher bzw. unlöslicher Harnstoffe oder Gelpartikel eingesetzt werden. Weiterhin können zum anderen überraschenderweise Beschichtungen erhalten werden, die neben einer ausgezeichneten Filmmechanik einen exzellenten, besonders weichen Griff und einen sehr hohen Tragekomfort aufweisen, was für viele Anwendungen sehr wichtig ist.

Gegenstand der Erfindung sind somit Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten, dadurch gekennzeichnet, daß sie organisch gelöste Umsetzungsprodukte sind,

- a) mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyols des Molekulargewichtes 500 bis 16 000,
- b) mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyisocyanates des Molekulargewichtes 140 bis 1 500,
- c) mindestens eines niedermolekularen, mindestens difunktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32 bis 500,
- d) mindestens einer, mindestens eine Alkoxysilangruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und
- e) gegebenenfalls einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-, Alkohol- oder Oximgruppe,

wobei die Menge an Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens 50 % der gesamten Abstoppermengende aus d) und e) beträgt.

5 Ein bevorzugter Gegenstand der Erfindung sind Polyurethanlösungen mit Alkoxy-
silanstruktureinheiten, dadurch gekennzeichnet, daß sie organisch gelöste Um-
setzungsprodukte sind

10 a) 40 bis 92 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyols des
Molekulargewichtes 500 bis 16000,

b) 7 bis 50 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyiso-
cyanates des Molekulargewichtes 140 bis 1 500,

15 c) 0,5 bis 20 Gew.-% mindestens eines niedermolekularen, mindestens di-
funktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32 bis 500,

d) 0,1 bis 5 Gew.-% mindestens einer, mindestens eine Alkoxysilangruppe und
eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und

20 e) gegebenenfalls einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-, Alkohol-
oder Oximgruppe,

25 wobei die Menge an Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens 75 %
der gesamten Abstoppermengende aus d) und e) beträgt.

Ein besonders bevorzugter Gegenstand der Erfindung sind Polyurethanlösungen, da-
durch gekennzeichnet, daß sie organisch gelöste Umsetzungsprodukte sind

30 a) 47 bis 88 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyols des
Molekularge-wichtes 500 bis 16 000,

- b) 10 bis 40 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyisocyanates des Molekulargewichtes 140 bis 1 500,
- 5 c) 0,8 bis 17 Gew.-% mindestens eines niedermolekularen, mindestens difunktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32 bis 500,
- d) 0,2 bis 3,0 Gew.-% einer eine Alkoxysilangruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und
- 10 e) 0-0,5 Gew.-% einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-, Alkohol- oder Oximgruppe,

wobei die Menge am Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens 95 %
15 der gesamten Abstoppermenge aus d) und e) beträgt.

Gegenstand der Erfindung ist auch ein Verfahren zur Herstellung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten, dadurch gekennzeichnet, daß zunächst
20 aus mindestens einem Polyol a), mindestens einem difunktionellen Polyisocyanates b) gegebenenfalls unter Mitverwendung einer niedermolekularen Komponente c) in einer ein- oder zweistufigen Reaktion ein isocyanatfunktionelles Polyurethan hergestellt wird, welches dann gegebenenfalls in einem weiteren Reaktionsschritt durch Umsetzung mit einer mindestens difunktionellen Komponente c) einen weiteren Molekulargewichtsaufbau erfährt und in einem abschließenden Reaktionsschritt
25 mit mindestens einer eine Alkoxysilangruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung d), gegebenenfalls unter Mitverwendung einer monofunktionellen Komponente c) zu einem keine freien Isocyanatgruppen mehr aufweisenden hochmolekularen Polyurethan mit Alkoxysilanstruktureinheiten umgesetzt wird, wobei entweder vor, während oder nach dem ersten Reaktionsschritt soviel organisches
30 Lösemittel zugesetzt wird, das die resultierende Polyurethanlösung mit Alkoxysilanendgruppen einen Festkörpergehalt von 9 bis 65 Gew.-% aufweist.

Gegenstand der Erfindung ist auch die Verwendung von Alkoxysilanstruktureinheiten aufweisenden Polyurethanlösungen in Lacken, Beschichtungen, Dichtstoffen und/oder Klebstoffen.

5

Die Bezeichnung Polyurethanlösung schließt auch Polyurethan-Polyharnstoff-Lösungen und auch Lösungen ein, die z.B. Trimerisat-, Uretidion-, Allophanat-, und/oder Biuretstruktureinheiten in untergeordneten Mengen neben Urethan- und/oder Harnstoffstruktureinheiten enthalten. Die Lösungen sind in der Regel klar, es sind jedoch auch Lösungen eingeschlossen, die ein trübes bzw. opakes Aussehen aufweisen, dies ist jedoch weniger bevorzugt.

10

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen geeignete Polyolkomponenten a) sind z.B. Polyesterpolyole (z.B. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 19, S. 62-65). Geeignete Rohstoffe zur Herstellung dieser Polyesterpolyole sind difunktionelle Alkohole wie Ethylenglykol, 1,2- und 1,3-Propylenglykol, 1,3-, 1,4-, 2,3-Butandiol, 1,6-Hexandiol, Neopentylglykol, Trimethylhexandiol, Triethylenglykol, Tetraethylenglykol, hydrierte Bisphenole, Trimethylpentandiol, Diethylendiglykol, Dipropyldiglykol, 1,4-Cyclohexan-diol, 1,4-Cyclohexandimethanol und difunktionelle Carbonsäuren bzw. deren Anhydride wie Adipinsäure, Phthalsäure(anhydrid), Isophthalsäure, Maleinsäure(anhydrid), Terephthalsäure, Tetrahydrophthalsäure(anhydrid), Hexahydrophthalsäure(anhydrid), Bernsteinsäure(anhydrid), Fumarsäure, Azelainsäure, Dimerfettsäuren. Ebenfalls zur Mitverwendung in untergeordneten Mengen geeignete Polyesterrohstoffe sind Monocarbonsäuren wie Benzoesäure, 2-Ethylhexansäure, Ölsäure, Sojaölfettsäure, Stearinfettsäure, Erdnußölfettsäure, Leinölfettsäure, Nonansäure, Cyclohexanmonocarbonsäure, Isononansäure, Sorbinsäure, Konjuefetsäure, höherfunktionelle Carbonsäuren oder Alkohole wie Trimellithsäure(anhydrid), Butantetracarbonsäure, Trimerfettsäuren, Trimethylolpropan, Glycerin, Pentaerythrit, Rizinusöl, Dipentaerythrit und andere nicht namentlich genannte Polyesterrohstoffe.

15

20

25

30

Ebenfalls geeignete Polyolkomponenten a) sind Polycarbonatdiole die z.B. durch Umsetzung von Diphenyl- oder Dimethylcarbonat mit niedermolekularen Di- oder Triolen bzw. epsilon-Caprolacton-modifizierten Di- oder Triolen erhalten werden können.

5

Ebenfalls geeignete Polyolkomponenten a) sind hydroxyfunktionelle Silicone bzw. Polysiloxane wie z.B. Baysilon® OF (Bayer AG).

10

Ebenfalls geeignet sind Polyesterdiole auf Lactonbasis, wobei es sich um Homo- oder Mischpolymerisate von Lactonen, bevorzugt um endständige Hydroxylgruppen aufweisende Anlagerungsprodukte von Lactonen wie z.B. epsilon-Caprolacton oder gamma-Butyrolacton an difunktionelle Startermoleküle handelt. Geeignete Startermoleküle können die oben genannten Diole, aber auch niedermolekulare Polyester- oder Polyetherdiole sein. Anstelle der Polymerisate von Lactonen können auch die

15

entsprechenden Hydroxycarbonsäuren eingesetzt werden.

Ebenfalls geeignete Polyolkomponenten a) sind Polyetherpolyole. Sie sind z.B. durch Polymerisation von Ethylenoxid, Propylenoxid und/oder Tetrahydrofuran mit sich selbst, z.B. in Gegenwart von BF_3 oder basischen Katalysatoren oder aber durch Anlagerung dieser Verbindungen gegebenenfalls auch im Gemisch oder nacheinander, an Starterkomponenten mit reaktionsfähigen Wasserstoffatomen, wie Alkohole, Amine, Aminoalkohole oder Wasser erhältlich.

20

25

Die genannten Polyolkomponenten a) können auch als Mischungen, gegebenenfalls auch zusammen mit anderen Polyolen a) wie z.B. Polyesteramiden, Polyetherestern, Polyacrylaten, Polyolen auf Epoxidharzbasis, eingesetzt werden.

30

Die Hydroxylzahl der Polyole a) liegt bei 5 bis 350, vorzugsweise bei 8 bis 200 mg KOH/g Substanz. Die Molekulargewichte der Polyole a) liegen zwischen 500 und 25 000, vorzugsweise zwischen 500 und 15 000, wobei in einer bevorzugten Aus-

führungsform zumindest teilweise Polyole a) mit einem Molekulargewicht von >9 000 g/Mol eingesetzt werden.

5 Bevorzugt werden als Komponente a) hydrolysestabile Polyole des Molekulargewichtes 300 bis 3 500, insbesondere 900 bis 2 500, bestehend insbesondere zu mindestens 50 % aus Polycarbonatdiolen, welche zusammen mit Tetrahydrofuran-
diolen und/oder di- bzw. trifunktionellen Polyethern auf Propylenoxid- bzw. Pro-
pylenoxid-/Ethylenoxidbasis bzw. Mischungen der genannten hydrolysestabilen
10 Polyole eingesetzt werden können, wobei bei Verwendung trifunktioneller Polyether-
polyole diese höchstens in Mengen bis zu 4 Gew.-% bezogen auf den Gesamtfest-
stoffgehalt des Polymers eingesetzt werden. Diese hydrolysestabilen Polyole können
auch zusammen mit Polyesterpolyolen, vorzugsweise Polyesterpolyolen mit ver-
gleichsweiser guter Hydrolysestabilität, wie z.B. Polyester auf Basis Phthalsäurean-
hydrid, Isophthalsäure, Dimerfettsäure, Hexandiol und/oder Neopentylglykol einge-
15 setzt werden.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden als Komponente a) hy-
drophile Polyole, wie z.B. Ethylenoxidpolyether, Ethylenoxid-/Propylenoxidpoly-
ether oder Polyester auf Basis von Triethylenglykol oder Teträthylenglykol und Di-
20 carbonsäuren in solchen Mengen eingesetzt, daß damit hergestellte Beschichtung
wasserdampfdurchlässig sind. Als Komponente a) sind dann vorzugsweise 10 bis
60 Gew.-% hydrophile Polyole neben 23 bis 50 Gew.-% nichthydrophilen Polyolen,
jeweils bezogen auf Gesamtfeststoffgehalt des Polyurethans, enthalten, wobei die
Gesamtmenge Komponente a) maximal 92 Gew.-% des Gesamtfeststoffgehaltes des
25 Polyurethans beträgt.

Entsprechende Polyurethanlösungen sind zur Herstellung hochwertiger Be-
schichtungen mit hoher Wasserdampfdurchlässigkeit und dem damit verbundenen,
ausgezeichneten Tragekomfort sehr gut geeignet. Die erfindungsgemäßen Be-
30 schichtungen vereinen dabei eine hohe Wasserdampfdurchlässigkeit mit einer sehr
guten Wasserfestigkeit bzw. Naßechtheit und einer relativ niedrigen Wasserquellung.

Der Gesamtanteil an hydrophilen Bestandteilen - Polyole a) und gegebenenfalls hydrophile Diole bzw. Diamine c)- beträgt dabei bezogen auf den Gesamtfeststoffgehalt der Polyurethanlösung 10 bis 60, vorzugsweise 20 bis 45 Gew.-%.

5

Die Komponente b) besteht aus mindestens einem organischen, mindestens difunktionellen Polyisocyanat des Molekulargewichtes 140 bis 1500, vorzugsweise 168 bis 500. Geeignet sind z.B. Hexamethylendiisocyanat (HDI), Isophorondiisocyanat (IPDI), 4,4'-Diisocyanato-dicyclohexylmethan (H12MDI), 1,4-Butandiisocyanat, H₆-2,4- und/oder 2,6-Diisocyanato-toluol, Hexahydrodiisocyanatoxytol, 2,4- oder 2,6- Diisocyanatotoluol (TDI), Xylylendiisocyanat und 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan (MDI). Ebenfalls mit verwendet werden können an sich bekannte Polyisocyanate auf Basis der genannten und auch anderer Isocyanate mit Uretidion-, Biuret-, Isocyanurat-, Iminoxadiazindion- oder Urethanstruktureinheiten, dies ist jedoch nicht bevorzugt.

15

Bevorzugt ist die ausschließliche Verwendung von aliphatischen und/oder cycloaliphatischen difunktionellen Isocyanaten des Molekulargewichtes 168 bis 262 wie Isophorondiisocyanat und/oder Hexamethylendiisocyanat und/oder Diisocyanatodicyclohexylmethan (Desmodur[®] W, Bayer AG) und/oder H₆-2,4- und/oder 2,6-Diisocyanatotoluol, wobei besonders bevorzugt die Komponente b) zu mindestens 75 Gew.-% aus Isophorondiisocyanat oder H₆-2,4- und/oder 2,6-Diisocyanatotoluol besteht.

20

Bevorzugt ist ebenfalls die ausschließliche Verwendung von aromatischen Diisocyanaten des Molekulargewichtes 174 bis 280, insbesondere 2,4- und/oder 2,6-Diisocyanatotoluol und/oder 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan.

25

In einer bevorzugten Ausführungsform werden allophanatgruppenhaltige, difunktionelle Isocyanate als Komponente b) eingesetzt. Solche Komponenten werden erhalten, indem ein Diisocyanat, vorzugsweise aromatische Diisocyanate wie z.B.

30

MDI oder TDI mit aliphatischen, linearen Monoalkoholen mit 4 bis 18 Kohlenstoffatomen wie z.B. n-Butanol, Hexanol, 2-Ethylhexanol oder Stearylalkohol gegebenenfalls unter Verwendung geeigneter Katalysatoren wie z.B. Zinkacetylacetonat bei Temperaturen von z.B. 40 bis 110°C unter Allophanatbildung umgesetzt werden.

5 Dabei führt die Umsetzung von 2 Molekülen Diisocyanat mit einem Molekül Monoalkohol zur Bildung eines Diisocyanates mit einer Allophanatstruktureinheit, wobei auch höhere Homologe gebildet werden können. Es ist auch möglich die Allophanatbildung in situ bei dem Aufbau des erfindungsgemäßen Polyurethans durchzuführen. Die Mitverwendung allophanatgruppenhaltiger Diisocyanate führt

10 überraschenderweise zu Polyurethanen, die die Herstellung von Beschichtungen mit besonders guten Beständigkeitseigenschaften z.B. gegen Lösemiteleinwirkung oder Wasser und einem angenehmen Griff ermöglichen.

Bei der Komponente c) handelt es sich um mindestens eine niedermolekulare Verbindungen des Molekulargewichtsbereiches 32 bis 500 mit mindestens zwei gegenüber Isocyanatgruppen reaktiven Gruppen. Diese reaktiven Gruppen sind vorzugsweise Hydroxyl- und/oder primäre bzw. sekundäre Aminogruppen.

15

Geeignete Komponenten c) sind z.B. Ethylenglykol, 1,2- bzw. 1,3-Propylenglykol, 1,4-Butan-diol, Neopentylglykol, 1,6-Hexandiol, Trimethylpentandiol, Trimethylolpropan, Glycerin, das Umsetzungsprodukt aus 2 Mol Propylencarbonat und 1 Mol Hydrazin, Ethylendiamin, Diethylentriamin, Isophorondiamin, Hexamethyldiamin, Acetonazin, 4,4-Diaminodicyclo-hexylmethan, Hydroxyethylethylendiamin, Ethanolamin, Diethanolamin, Isopropanolamin, Diisopropanolamin, N-Methylethanolamin, Aminomethylpropanol, Hydrazin(hydrat), Propylendiamin, Dimethylethylendiamin, Adipinsäuredihydrazid, 2-Aminoethylaminoethan-sulphonat, das 1:1-Umsetzungsprodukt aus Acrylsäure und Isophorondiamin oder Ethylendiamin, Dimethylolessigsäure, 2,2'-Dimethylolpropionsäure, 2,2'-Dimethylolbuttersäure, 2,2'-Dimethylolpentansäure, gegebenenfalls Ethergruppen aufweisenden Sulphonatdiolen der in der US-A 4 108 814 beschriebenen Art, aminofunktionelle Sulphonate mit

20

25

30

ein oder zwei Aminogruppen, N-2-(aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan.

Wird eine Komponente c) im ersten, einstufig oder zweistufig durchgeführten Reaktionsschritt mitverwendet, so werden vorzugsweise dihydroxyfunktionelle Verbindungen, insbesondere Ethylenglykol, 1,4-Butandiol, 1,6-Hexandiol oder Ethergruppen aufweisende Sulphonatdiole eingesetzt.

Wird eine Komponente c), vorzugsweise nach Zugabe von Lösemittel im zweiten Reaktionsschritt eingesetzt, so werden vorzugsweise diaminofunktionelle Verbindungen, insbesondere Ethylendiamin, Isophorondiamin, 4,4-Diaminodicyclohexymethan, Hydrazin(hydrat), Adipinsäuredihydrazid, 2-Aminoethylaminoethansulphonat eingesetzt.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden Alkoxysilangruppen enthaltende, diaminofunktionelle Komponenten c) als Kettenverlängerer, vorzugsweise in Mengen bis 2 Gew.-%, mit verwendet. Die Verwendung größerer Mengen solcher Komponenten c) führt überraschenderweise zu Polyurethanlösungen, die bei Verwendung als Beschichtungen eine zu hohe Härte, eine zu geringe Dehnfähigkeit bzw. Elastizität, vor allem bei niedrigen Temperaturen, und einen relativ harten, kalten und eher unangenehmen Griff ergeben.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden als Komponente c) hydrophile, Salzgruppen aufweisende difunktionelle Verbindungen der oben genannten Art in Mengen von 2 bis 16 Gew.-%, besonders bevorzugt von 2,5 bis 13 Gew.-% gegebenenfalls in Kombination mit hydrophilen Polyolen a) eingesetzt, um entsprechenden Beschichtungen wasserdampfdurchlässigen Charakter zu verleihen.

Besonders bevorzugt werden dabei hydrophile Komponenten c) zusammen mit den oben genannten hydrophilen Polyolen a) eingesetzt. Dadurch können Beschichtungen mit besonders hoher Wasserdampfdurchlässigkeit hergestellt werden.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden als Komponente c) Hydrazin(hydrat), Adipinsäuredihydrazid und/oder das Umsetzungsprodukt aus 2 Mol Propylen-carbonat und 1 Mol Hydrazin in Mengen von 0,1 bis 4,5 Gew.-% mitverwendet. Damit können Polyurethanlösungen mit besonders hoher Thermo- und Verfärbungs-
5 stabilität erhalten werden.

Als Komponente d) geeignete Alkoxysilane sind Aminoalkylsiloxane wie z.B. 3-Aminopropyltriethoxysilan, 3-Amino-propyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltributoxysilan, 2-Aminoethyltriethoxysilan, 2-Amino-ethyltrimethoxysilan, 2-Amino-ethyltributoxysilan, 4-Aminobutyltriethoxysilan, 4-Amino-butyltrimethoxysilan, Umsetzungsprodukte der genannten Alkoxysilane mit Maleinsäuredialkylestern wie z.B. Maleinsäurediethylester, Maleinsäuredimethylester oder Maleinsäuredibutylester, N-Phenylaminopropyltrimethoxysilan, Bis-(3-trimethoxysilylpropyl)amin, Ver-
10 bindungen der genannten Art, bei der eine oder zwei der Alkoxygruppen durch Alkylgruppen ersetzt sind und Mischungen der genannten und auch anderen Alkoxy-
15 silane.

Komponenten d) werden in Mengen von 0,1 bis 5, vorzugsweise von 0,2 bis 3,0, besonders bevorzugt von 0,3 bis 1,3 Gew.-% eingesetzt.

20 In einer bevorzugten Ausführungsform beträgt der rechnerisch ermittelte Gehalt des Feststoffes der Polyurethanlösungen an $-Si(O-)_3$ Struktureinheiten weniger als 1,2 Gew.-%. Damit können z.B. Beschichtungen für Textilien und Leder mit hohem mechanischem Eigenschaftsniveau, insbesondere betreffend Dehnfähigkeit und
25 Elastizität, und angenehm weichen Griff erhalten werden. Höhere Anteile an diesen Struktureinheiten führen zu Beschichtungen, die diese gewünschten Eigenschaften nur noch im reduzierten Maß zeigen.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird als Komponente d) ein mono-
30 funktionelles Alkoxysilan in Mengen von 0,3 bis 1,3 Gew.-% zusammen mit 0,1 bis 2,0 Gew.-% eines diaminofunktionellen Alkoxysilans Komponente c) eingesetzt, wo-

bei die Anzahl der endständigen Alkoxysilangruppen mindestens 50 Gew.-% aller eingebauten Alkoxysilangruppen betragen muß. Entsprechende Polyurethanlösungen, führen überraschenderweise ebenfalls zu Beschichtungen, die die gestellten Anforderungen erfüllen und darüber hinaus sowohl eine ausgezeichnete Filmmechanik, insbesondere eine hoher Dehnfähigkeit und Elastizität, als auch gleichzeitig sehr hohe Schmelz- bzw. Erweichungstemperaturen aufweisen, was für viele Anwendungen, z.B. in der Textilbeschichtung, sehr vorteilhaft ist.

Bei höheren Anteilen an seitenständigen Alkoxysilanstruktureinheiten resultieren dagegen Beschichtungen, die überraschenderweise deutlich weniger elastisch und dehnfähig sind, sowie einen eher unangenehmen, kalten Griff aufweisen. In den Haftungseigenschaften müssen dann ebenfalls häufig Abstriche gemacht werden.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform wird als Komponente d) ein monoaminofunktionelles Umsetzungsprodukte eines monoaminofunktionellen Alkoxysilans mit 0,5 bis 1,1, vorzugsweise 0,9 bis 1,05 Äquivalenten Maleinsäurealkylestern, gegebenenfalls zusammen mit einem diaminofunktionellen Alkoxysilan, eingesetzt.

Polyurethanlösungen, die als Abstopper ein Asparaginsäureesterstruktureinheiten enthaltendes Umsetzungsprodukt einer Verbindung mit einer primären Aminogruppe und mindestens einer Alkoxysilangruppe mit einem Maleinsäuredialkylester und zusätzlich eine diaminofunktionelle, Alkoxysilanstrukturen aufweisende Verbindung in untergeordneter Menge aufweisen, sind ebenfalls sehr gut z.B. zur Herstellung von hochwertigen Beschichtungen geeignet.

Geeignete gegebenenfalls bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen mitzuverwendete monofunktionelle Blockierungsmittel e) können z.B. sein: Butanonoxim, Cyclohexanonoxim, Acetonoxim, Malonester, Triazol, Dimethylpyrazol, monofunktionelle Amine wie z.B. Dibutylamin, Diisopropylamin, monofunktionelle Alkohole wie z.B. Ethanol. Falls Komponenten e) eingesetzt werden, ge-

schiebt dies vorzugsweise derart, daß zunächst Komponente e) und im Anschluß daran Komponente d) zugegeben wird. Dadurch wird sichergestellt, daß keine nicht-umgesetzte Komponenten e) in den erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen mehr enthalten sind.

5

Die Menge an Alkoxysilangruppen enthaltenden Abstopperreagenzien d) bezogen auf die gesamte Abstoppermenge d) und e) beträgt mindestens 50, vorzugsweise 75, ganz besonders bevorzugt mindestens 95 Gew.-%.

10

Die erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen mit Alkoxysilangruppen zeigen bei Raumtemperatur bis zu 75°C eine praxisgerechte Lagerstabilität. Nach der Applikation erfolgt die Trocknung bei Raumtemperatur bis 200°C, vorzugsweise bei 60 bis 160°C.

15

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen mit Alkoxysilangruppen erfolgt derart, daß zunächst aus mindestens einem Polyol a), mindestens einem difunktionellen Polyisocyanat b) gegebenenfalls unter Mitverwendung einer niedermolekularen hydroxyfunktionellen Komponente c) in einer ein- oder zweistufigen Reaktion ein isocyanatfunktionelles Polyurethan hergestellt wird, welches dann gegebenenfalls in einem weiteren Reaktionsschritt durch Umsetzung mit einer mindestens difunktionellen Komponente c) gegebenenfalls unter Mitverwendung einer mindestens diaminofunktionellen Alkoxysilangruppen enthaltenden Komponente d) einen weiteren Molekulargewichtsaufbau erfährt und in einem abschließenden Reaktionsschritt mit einer monoaminofunktionellen Alkoxysilangruppen enthaltenden Komponente d), gegebenenfalls unter Mitverwendung einer monofunktionellen Komponente e) zu einem keine freien Isocyanatgruppen mehr aufweisenden hochmolekularen Polyurethan mit Alkoxysilanendgruppen umgesetzt wird, wobei entweder vor, während oder nach dem ersten Reaktionsschritt soviel organisches Lösemittel zugesetzt wird, das die resultierende Polyurethanlösung mit Alkoxysilanendgruppen einen Festkörpergehalt von 9 bis 65 Gew.-% aufweist.

25

30

In einer Verfahrensvariante kann auch eine einstufige Umsetzung aller Komponenten a), b) und gegebenenfalls c) zu einem isocyanatfunktionellen hochmolekularen Polyurethan, üblicherweise in Anwesenheit geeigneter Lösemittel durchgeführt werden, wobei gegebenenfalls durch geringes Nachsetzen von Polyisocyanat b) und/oder niedermolekulare difunktionelle Komponente c) die gewünschte Viskosität und damit das zur Erzielung der erforderlichen Eigenschaften nötige Molekulargewicht erreicht wird und wobei anschließend die Kettenabbruchreaktion durch Zugabe eines monoaminofunktionellen Alkoxysilans erfolgt. Bei dieser Verfahrensvariante werden vorzugsweise monoaminofunktionelle Alkoxysilane in Mengen von 0,3 bis 1,3 Gew.-% eingesetzt.

Die Umsetzung der Komponenten erfolgt in der Regel bei Raumtemperatur bis 120°C, wobei üblicherweise zu Beginn der Herstellung die Umsetzung bei höherer Temperatur, z.B. bei 60 bis 120° C und am Ende bei der Kettenverlängerung bis Kettenabbruchreaktion die Umsetzung bei niedrigeren Temperaturen, z.B. bei Raumtemperatur bis 60° C vorgenommen wird.

Die Umsetzung der Komponenten kann unter Zusatz von üblichen Katalysatoren wie z.B. Dibutylzinndilaurat, Zinn-2-octoat, Dibutylzinnoxid oder Diazabicyclononan durchgeführt werden.

Geeignete Lösemittel zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen sind z.B. Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylpyrrolidon, Methylethylketon, Methylisobutylketon, Cyclohexanon, Toluol, Xylol, tert. Butanol, Isopropanol, Ethylacetat, Butylacetat, Methoxypropanol, Butylglykol, Methoxypropylacetat, Isobutanol. Die Auswahl von Art, Menge und Zeitpunkt der Zugabe des Lösemittels bzw. der Lösemittelgemische muß derart gewählt werden, daß die Löslichkeit des Endproduktes bzw. der Zwischenstufen gegeben ist, die Viskositäten in einem technisch beherrschbaren Rahmen, d.h. üblicherweise < 200 000 mPas (23°C), liegen und eine Reaktion der Lösemittel mit den Rohstoffen des Polyurethans weitestgehend ausgeschlossen ist. Das heißt z.B., daß alkoholische Lösemittel erst dann ver-

wendet werden sollten, wenn bei der Herstellung des Polyurethans nur noch Isocyanat-Amin-Reaktionen bzw. vergleichbar schnell ablaufende Reaktionen stattfinden.

- 5 Die Festkörpergehalt der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen liegen bei 9 bis 65, vorzugsweise bei 20 bis 50 Gew.-%.

Die Viskositäten der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen liegen bei 1 000 bis 200 000 mPas (23°C), vorzugsweise bei 3 000 bis 80 000 mPas (23 °C).

10

Die Molekulargewichte der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen können z.B. durch Gelpermeationschromatographie bestimmt werden. Sie liegen zwischen 4 000 und 500 000, vorzugsweise zwischen 25 000 und 250 000 g/Mol.

- 15 Vor, während oder nach der Herstellung bzw. vor oder während der Anwendung der erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen können übliche Hilfs- und Zusatzmittel zugegeben werden wie z.B. Stabilisatoren, Lichtschutzmittel, Verlaufshilfsmittel, Mattierungsmittel, Thermostabilisatoren, Trennmittel, Antioxidantien, UV-Absorber, HALS-Wirkstoffe, Entschäumer, Haftvermittler, Antistatika, Konservierungsmittel,
20 Katalysatoren.

- Die erfindungsgemäßen Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten eignen sich für die Verwendung in Lacken, Beschichtungen, Dichtmassen, Druckfarben und Klebstoffen. Sie können dabei alleine und/oder nach Zusatz der üblichen
25 Hilfsmittel, Zusatzmittel, Pigmente, Füllstoffe, Weichmacher, Löse- und Verdünnungsmittel und/oder in Kombination mit anderen Polymeren bzw. Polymerlösungen oder Oligomeren wie z.B. Polyurethanlösungen, Polyhamstofflösungen, Polyurethan-Polyham-stofflösungen, Co- und Homopolymerisatlösungen, Chlorkautschuklösungen, Nitrocelluloselösungen, Celluloseacetat/butyratlösungen, Polyacrylatlösungen, Polyether(lösungen), Polyamidlösungen, Polycyepoxid(lösungen), Polyester(lösungen), Polyisocyanat(lösungen), Melamin-Aldehyd-Harz(lösungen), Harn-
- 30

stoffharz(lösungen), Polybutadienlösungen oder Polyolefinlösungen verwendet werden.

5 Geeignete Anwendungsbereiche sind z.B. die Textilbeschichtung, die Lederbeschichtung, die Kunstlederbeschichtung, Kunststoffbeschichtung und -lackierung, Metallackierung, Lackieren und Beschichten von Holz, Holzwerkstoffen und Möbeln, Beschichtung und Lackierung mineralischer Untergründe aller Art, Straßenmarkierungsfarben. Die erfindungsgemäßen Poly-urethanlösungen können dabei z.B.
10 als Grundierung, Zwischenschicht, Füller, Basislack, Decklack, Klarlack, Einschichtlack, mikroporöse Beschichtung, Haftgrund, Deckstrich, Finish, Direktstrich, Zwischenstrich, Schaumstrich eingesetzt werden.

Die Applikation kann nach allen technisch angewandten Verfahren erfolgen, wie z.B. Gießen, Tauchen, Walzen, Rollen, Streichen, Spritzen, Rakeln oder Koagulation.

15

Beispiele

Beispiel 1

5 In einem 3-l-Reaktionsgefäß mit Rühr-, Kühl- und Heizvorrichtung werden 520 g eines difunktionellen Propylenoxidpolyethers mit dem Molekulargewicht 2 000 g/Mol eingewogen und auf 60°C erwärmt. Dann werden 205 g 4,4'-MDI (Desmodur 44M, Bayer AG) zugegeben und bei 70°C solange umgesetzt, bis der theoretische Isocyanatwert erreicht bzw. leicht unterschritten worden ist. Dann
10 werden 182 g Dimethylformamid zugegeben und das Polymer gelöst. Dann werden bei 50° C 39,8 g Butandiol-1,4 in 30 Minuten und anschließend weitere 271 g Dimethylformamid zugegeben. Nachdem der theoretische Isocyanatwert erreicht ist, werden 403 g Methylethylketon und 400 g Toluol zugegeben und auf 30°C abgekühlt. In einem separaten Gefäß wird eine Kettenverlängerungslösung aus 15,6 g Iso-
15 phorondiamin und 104 g Toluol hergestellt. 60 % dieser Lösung wird auf einmal zur isocyanatfunktionellen Polyurethanlösung gegeben. Über IR-Spektroskopie wird dabei der Abfall des Isocyanatgehaltes verfolgt. Durch Zugabe kleiner Mengen der Kettenverlängerungslösung in mehreren Schritten (insgesamt werden weitere 15 % der Kettenverlängerungslösung zugegeben) wird das Molekulargewicht, indirekt über
20 die Viskositätsmessungen bestimmt, aufgebaut. Nachdem eine Viskosität von ca. 16 000 mPas erreicht ist, wird zum Abbruch der Reaktion 18,6 g eines 1:1 Umsetzungsproduktes aus 3-Aminopropyltriethoxysilan und Maleinsäurediethylester zugegeben und solange gerührt, bis keine Isocyanatgruppen mehr nachweisbar sind. Man erhält ein 35 %ige Polyurethanlösung mit endständigen Alkoxysilanstrukturein-
25 heiten, die Viskosität beträgt 15 000 mPas.

Während einer Raumtemperaturlagerung im geschlossenen Gefäß über 3 Monate blieb die Viskosität konstant, nach einer Lagerung im geschlossenen Gefäß bei 60°C über 4 Wochen wurde eine Viskosität von 16 000 mPas festgestellt. Damit ist eine
30 praxisgerechte Viskositätsstabilität gegeben.

Die anwendungstechnische Prüfung als Beschichtungsfilm (Filmstärke 45 g/m²) ergab folgende Werte:

Modul 100%: 2,1 MPa

Zugfestigkeit/Bruchdehnung (trocken): 14,3 MPa/790 %

5 Zugfestigkeit/Bruchdehnung (naß): 14,0 MPa 730 %

Volumenquellung mit Ethylacetat: 350 %

Schmelzpunkt: 155 °C

10 Dies sind typische Filmwerte, wie sie z.B. bei der Verwendung des Produktes als hochwertiger weicher Direktstrich in der Textilbeschichtung gefordert werden.

Vergleichsbeispiel 2a)

15 Zu Vergleichszwecken wurde der Versuch 1) wiederholt, allerdings ohne Zugabe eines Abstoppreagenzes. Die 35 %ige Polyurethanlösung hatte eine Viskosität von 13 000 mPas.

20 Bei 60°C Lagerung im geschlossenen Gefäß stieg die Viskosität nach wenigen Tagen soweit an, daß keine Viskositätsmessung mehr möglich war. Die Lösung zeigte keine praxisgerechte Stabilität.

Dies bestätigt die Wirksamkeit des monoammonofunktionellen Alkoxysilans als Abstoppreagenz.

25 Beispiel 2b

30 Zu Vergleichszwecken wurde der Versuch 1) wiederholt, allerdings wurde die Abstoppermenge um 30 % erhöht, um den Einfluß von überschüssigem Abstoppreagenz auf die Lagerstabilität zu bestimmen. Die 35 %ige Polyurethanlösung hatte eine Viskosität von 13 000 mPas. Nach 4 Wochen Lagerung bei 60°C im geschlos-

senen Gefäß wurde eine Viskosität von 14 500 mPas bestimmt. Damit hat diese Lösung eine praxisgerechte Lagerstabilität.

5 Beispiel 3

In einem 3-l-Reaktionsgefäß mit Rühr-, Kühl- und Heizvorrichtung werden 450,5 g eines difunktionellen Adipinsäure-Hexandiol-Neopentylglykol-Polyesters mit dem Molekulargewicht 1 700 g/Mol eingewogen und auf 70°C erwärmt. Dann werden
10 122,1 g Isophorondiisocyanat (Desmodur I, Bayer AG) zugegeben und bei 100°C solange umgesetzt, bis der theoretische Isocyanatwert erreicht worden ist. Dann werden 604 g Toluol zugegeben, das Polymer gelöst und auf 30°C abgekühlt. Direkt nach Zugabe von 302 g Isopropanol wird eine in einem separaten Gefäß hergestellte Kettenverlängerungslösung aus 46,8 g Isophorondiamin, 302 g Isopropanol und
15 250 g Methoxypropanol in 30 Minuten zudosiert. Nach Ende der Zugabe ist ein starker Viskositätsanstieg zu beobachten. 15 Minuten nach der Zugabe ist eine Viskosität von 20 000 mPas (23°C) erreicht, dann werden 6,2 g Aminopropyltriethoxysilan zugegeben und solange gerührt bis keine Isocyanatgruppen mehr nachweisbar sind. Man erhält ein 30 %ige Polyurethanlösung mit endständigen Alkoxy-
20 silanstruktureinheiten, die Viskosität beträgt 20 500 mPas.

Nach 4 Wochen Lagerung im geschlossenen Gefäß bei 60°C beträgt die Viskosität 22 000 mPas.

25 Vergleichsbeispiel 4

Zu Vergleichszwecken wurde der Versuch 2) wiederholt, allerdings wurde als Kettenabbruchreagenz eine äquivalente Menge an Di-butylamin eingesetzt.

30 Bei 50°C Lagerung im geschlossenen Gefäß war die Viskosität von ursprünglich 22 000 mPas bis auf 8 500 mPas abgefallen. Dies ist wahrscheinlich auf eine mole-

kulargewichtserniedrigende und damit viskositätsreduzierend wirkende Reaktion überschüssigen Dibutylamins mit den Esterbindungen des Polyols zurückzuführen.

Vergleichsbeispiel 5

5

Zu Vergleichszwecken wurde der Versuch 2) wiederholt, allerdings wurde als Kettenabbruchreagenz eine äquivalente Menge an Butanonoxim eingesetzt. Damit konnte ebenfalls eine bei 60°C Lagerung stabile Polyurethanlösung erhalten werden.

10

Zum Vergleich der Beschichtungseigenschaften wurde aus den Polyurethanlösungen gemäß Beispiel 3) und Vergleichsbeispiel 5) Beschichtungsfilme angefertigt, getrocknet und geprüft.

Die Filmstärke betrug 42 g/m².

15

Folgende Ergebnisse wurden erhalten:

	Beispiel 3	Vergleichsbeispiel 5
Modul 100 %	5,8 MPa	4,5 MPa
Zugfestigkeit/Bruchdehnung	58,3 MPa/680 %	45,0 MPa/450 %
(trocken):		
Zugfestigkeit/Bruchdehnung	55,4 MPa/660 %	35,0 MPa/450 %
(nach 2 Wochen Hydrolysetest)		
Volumenquellung Ethylacetat	350 %	450 %
Schmelzpunkt	165°C	165°C

20

Die Ergebnisse zeigen, dass die erfindungsgemäße Polyurethanlösung die Herstellung von Beschichtungen ermöglicht mit besseren mechanischen Filmwerten, verbesserter Hydrolysebeständigkeiten sowie geringerer Quellung mit Essigester.

Beispiel 6

In einem 3-l-Reaktionsgefäß mit Rühr-, Kühl- und Heizvorrichtung werden 270 g eines difunktionellen hydrophilen Ethylenoxidpolyethers mit dem Molekulargewicht 2 000 g/Mol, 57,9 g eines difunktionellen aliphatischen Polycarbonatdiols mit dem Molekulargewicht 2 000 g/Mol (Desmophen 2020, Bayer AG) und 57,9 g eines difunktionellen Tetrahydrofuranpolyethers mit dem Molekulargewicht 2 000 g/Mol und 52 g Butandiol-1,4 eingewogen und auf 60°C erwärmt. Dann werden 203 g 4,4'-MDI (Desmodur 44M, Bayer AG) sowie 748 g Dimethylformamid und 748 g Toluol zugegeben und bei 70°C solange umgesetzt, bis die gewünschte Viskosität erreicht ist. Falls vor Erreichen der Zielviskosität (20-30 000 mPas bei 23°C) der Isocyanatgehalt 0 erreicht wird, werden geringe Mengen 4,4'-MDI und gegebenenfalls auch geringe Mengen Butandiol-1,4 nachgesetzt. Bei Erreichen der Zielviskosität werden 4,5 g 3-Aminopropyltrimethoxysilan zugegeben und solange gerührt, bis der Isocyanatwert 0 ist, gegebenenfalls muß eine kleine Menge kettenabbrechendes monoaminofunktionelles Alkoxysilan nachgesetzt werden. Man erhält ein 30 %ige Polyurethanlösung mit endständigen Alkoxysilanstruktureinheiten, die Viskosität beträgt 24 000 mPas.

Während einer Raumtemperaturlagerung im geschlossenen Gefäß über 3 Monate blieb die Viskosität konstant. Nach einer Lagerung im geschlossenen Gefäß bei 60°C über 4 Wochen wurde eine Viskosität von 24 000 mPas ermittelt.

Die anwendungstechnische Prüfung als Beschichtungsfilm ergab folgende Werte:

Modul 100%: 5,4 MPa
Zugfestigkeit/Bruchdehnung (trocken): 32,9 MPa/590 %
Zugfestigkeit/Bruchdehnung (naß): 30,7 MPa/850 %
Volumenquellung mit Ethylacetat: 80 %
Volumenquellung mit Wasser: 80 %
Wasserdampfdurchlässigkeit nach SST: 15 000 g m²·d

Die Wasserdampfdurchlässigkeit wird nach den Maßgaben gemessen, wie sie in der Druckschrift DS 2109 TM1 der British Textile Technology Group, Manchester, England niedergelegt ist.

5

Überraschenderweise können auch besonders hochwertige Beschichtungen mit hoher Wasserdampfdurchlässigkeit, wie sie z.B. bei der Herstellung hochwertiger weicher Direktstriche oder Deckstriche für wasserdampfdurchlässige textile Materialien im Bekleidungs- und Hygienesektor gefordert werden, hergestellt werden.

10

Beispiel 7

In einem 3-l-Reaktionsgefäß mit Rühr-, Kühl- und Heizvorrichtung werden 450,5 g
15 eines difunktionellen Adipinsäure-Hexandiol-Neopentylglykol-Polyesters mit dem Molekulargewicht 1 700 g/Mol eingewogen und auf 70°C erwärmt. Dann werden 122,1 g Isophorondiisocyanat (Desmodur I, Bayer AG) zugegeben und bei 100°C so lange umgesetzt, bis der theoretische Isocyanatwert erreicht worden ist. Dann werden 608 g Toluol zugegeben, das Polymer gelöst und auf 30°C abgekühlt. Direkt nach
20 Zugabe von 304 g Isopropanol wird eine in einem separaten Gefäß hergestellte Kettenverlängerungslösung aus 39,9 g Isophorondiamin, 304 g Isopropanol, 252 g Methoxypropanol und 9,0 g N-2-(aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxy-silan in 30 Minuten zudosiert. Nach Ende der Zugabe ist ein starker Viskositätsanstieg zu beobachten. 15 Minuten nach der Zugabe ist eine Viskosität von 22 000 mPas (23°C)
25 erreicht, dann werden 6,2 g Aminopropyltrimethoxysilan zugegeben und solange gerührt bis keine Isocyanatgruppen mehr nachweisbar sind.

30

Man erhält ein 30 %ige Polyurethanlösung mit end- und seitenständigen Alkoxy-silanstruktureinheiten, die Viskosität beträgt 20 500 mPas.

Die anwendungstechnische Prüfung als Beschichtungsfilm ergab folgende Werte:

Modul 100 %: 5,9 MPa

Zugfestigkeit/Bruchdehnung (trocken): 51,9 MPa/500 %

5 Zugfestigkeit/Bruchdehnung nach 2 Wochen Hydrolysetest: 50,7 MPa/450 %

Volumenquellung mit Ethylacetat: 350 %

Schmelzpunkt: 210°C

10 Vergleicht man dieses Ergebnis mit dem Prüfergebnis aus Vergleichsbeispiel 5),
welches keine seiten- bzw. endständigen Alkoxysilangruppen, dafür jedoch
Butanonoxim als Abstopp-reagenz enthält, so erkennt man, daß die erfindungsge-
mäßige Polyurethanlösung ein ausgezeichnetes mechanisches Eigenschaftsniveau, ins-
besondere eine ausgezeichnete Hydrolysebeständigkeit, trotz der Verwendung eines
Polyesterpolyols, und für einige Anwendung, z.B. im Textilbeschichtungsbereich be-
15 sonders vorteilhaft, einen deutlich höheren Schmelzpunkt aufweist.

Dieses Ergebnis ist besonders überraschend, weil die Kombination aus hohem film-
mechanischen Eigenschaftsniveau, insbesondere sehr hoher Dehnfähigkeit bzw.
Elastizität, sehr guter Hydrolysebeständigkeit und hohem Schmelzpunkt mit Poly-
20 urethanlösungen nach dem Stand der Technik nicht erreichbar ist.

Patentansprüche

1. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten, dadurch gekennzeichnet, daß sie organisch gelöste Umsetzungsprodukte sind,
- 5
- a) mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyols des Molekulargewichtes 500 bis 16 000,
- b) mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyisocyanates des
- 10 Molekulargewichtes 140 bis 1 500,
- c) mindestens eines niedermolekularen, mindestens difunktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32 bis 500,
- 15 d) mindestens einer, mindestens eine Alkoxysilangruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und
- e) gegebenenfalls einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-, Alkohol- oder Oximgruppe,
- 20
- wobei die Menge an Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens 50 % der gesamten Abstoppermengung aus d) und e) beträgt.
2. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1,
- 25
- a) 40 bis 92 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyols des Molekulargewichtes 500 bis 16 000,
- 30
- b) 7 bis 50 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Polyisocyanates des Molekulargewichtes 140 bis 1 500,

- c) 0,5 bis 20 Gew.-% mindestens eines niedermolekularen, mindestens difunktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32 bis 500,

5

- d) 0,1 bis 5 Gew.-% mindestens einer, mindestens eine Alkoxysilan-
gruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und

10

- e) gegebenenfalls einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-,
Alkohol- oder Oximgruppe,

wobei die Menge am Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens
75 % der gesamten Abstoppermenge aus d) und e) beträgt.

15

3. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet, daß sie organisch gelöste Umsetzungsprodukte sind,

20

- a) 47 bis 88 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen
Polyols des Molekulargewichtes 500 bis 16 000,

- b) 10 bis 40 Gew.-% mindestens eines, mindestens difunktionellen Poly-
isocyanates des Molekulargewichtes 140 bis 1 500,

25

- c) 0,8 bis 17 Gew.-% mindestens eines niedermolekularen, mindestens
difunktionellen Alkohols und/oder Amins des Molekulargewichtes 32
bis 500,

30

- d) 0,2 bis 3,0 Gew.-% einer eine Alkoxysilangruppe und eine isocyanat-
reaktive Gruppe enthaltenden Verbindung und

- e) 0-0,5 Gew.-% einer monofunktionellen Substanz mit einer Amino-, Alkohol- oder Oximgruppe,

wobei die Menge am Abstopperäquivalenten aus Komponente d) mindestens 95 % der gesamten Abstoppermenge aus d) und e) beträgt.

5

10

15

20

25

30

4. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Komponente a) zu mindestens 50 Gew.-% aus Polycarbonatdiolen des Molekulargewichtes 900 bis 2 500 besteht.
5. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente a) 10 bis 60 Gew.-% hydrophile Polyole neben 23 bis 50 Gew.-% nichthydrophilen Polyolen, jeweils bezogen auf Gesamtfeststoffgehalt des Polyurethans, enthalten sind, wobei die Gesamtmenge Komponente a) maximal 92 Gew.-% des Gesamtfeststoffgehaltes des Polyurethans beträgt.
6. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente b) ausschließlich aliphatische bzw. cycloaliphatische Diisocyanate, bestehend zu mindestens 75 Gew.-% aus Isophorondiisocyanat enthalten ist.
7. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente b) ausschließlich 2,4- bzw. 2,6-Diisocyanatotoluol und/oder 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan enthalten sind.
8. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente b) Allophanatgruppen enthaltende Diisocyanate enthalten sind.

9. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente c) hydrophile, Salzgruppen aufweisende difunktionelle Verbindungen in Mengen von 2 bis 16 Gew.-% enthalten sind.
- 5
10. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß eine hydrophile Komponente c) zusammen mit einem hydrophilen Polyol a) enthalten ist.
- 10
11. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Alkoxysilangruppen enthaltende, diamino-funktionelle Komponenten c) als Kettenverlängerer in Mengen bis 2 Gew.-% enthalten sind.
- 15
12. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente c) Hydrazin(hydrat), Adipin-säuredihydrazid und/oder das Umsetzungsprodukt aus 2 Mol Propylen-carbonat und 1 Mol Hydrazin in Mengen von 0,1 bis 1,5 Gew.-% enthalten sind.
- 20
13. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß 0,3 bis 1,3 Gew.-% einer Verbindung mit einer isocyanatreaktiven Gruppe und mindestens einer Alkoxysilangruppe enthalten sind.
- 25
14. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente d) ein monoaminofunk-tionelles, Asparaginsäureesterstrukturen enthaltendes Umsetzungsprodukte eines monoaminofunktionellen Alkoxysilans mit 0,5 bis 1,1 Äquivalenten Maleinsäurealkylestern enthalten ist.
- 30

15. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der rechnerisch ermittelte Gehalt des Feststoffes der Polyurethanlösungen an $-\text{Si}(\text{O}-)_3$ Struktureinheiten weniger als 1,2 Gew.-% beträgt.
- 5
16. Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente d) ein monoaminofunktionelles Alkoxysilan in Mengen von 0,3 bis 1,3 Gew.-% zusammen mit 0,1 bis 2,0 Gew.-% eines diaminofunktionellen Alkoxysilans Komponente c) enthalten
- 10 ist, wobei die Anzahl der endständigen Alkoxysilangruppen mindestens 50 Gew.-% aller eingebauten Alkoxysilangruppen beträgt
17. Verfahren zur Herstellung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zunächst aus
- 15 mindestens einem Polyol a), mindestens einem difunktionellen Polyisocyanates b) gegebenenfalls unter Mitverwendung einer niedermolekularen Komponente c) in einer ein- oder zweistufigen Reaktion ein isocyanatfunktionelles Polyurethan hergestellt wird, welches dann gegebenenfalls in einem weiteren Reaktionsschritt durch Umsetzung mit einer mindestens di-
- 20 funktionellen Komponente c) einen weiteren Molekulargewichtsaufbau erfährt und in einem abschließenden Reaktionsschritt mit mindestens einer Alkoxysilangruppe und eine isocyanatreaktive Gruppe enthaltenden Verbindung d), gegebenenfalls unter Mitverwendung einer monofunktionellen Komponente e) zu einem keine freien Isocyanatgruppen mehr aufweisenden
- 25 hochmolekularen Polyurethan mit Alkoxysilanstruktureinheiten umgesetzt wird, wobei entweder vor, während oder nach dem ersten Reaktionsschritt soviel organisches Lösemittel zugesetzt wird, das die resultierende Polyurethanlösung mit Alkoxysilanendgruppen einen Festkörpergehalt von 9 bis 65 Gew.-% aufweist.

18. Verfahren zur Herstellung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilan-
struktureinheiten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß eine ein-
stufige Umsetzung der Komponenten a), b) und gegebenenfalls c) zu einem
isocyanatfunktionellen hochmolekularen Polyurethan, gegebenenfalls in An-
wesenheit geeigneter Lösemittel, wobei gegebenenfalls durch geringes Nach-
setzen von Polyisocyanat b) und/oder niedermolekulare difunktionelle
Komponente c) die gewünschte Viskosität und damit das zur Erzielung der er-
forderlichen Eigenschaften nötige Molekulargewicht erreicht wird und wobei
anschließend die Kettenabbruchreaktion durch Zugabe eines monoamino-
funktionellen Alkoxysilans d) erfolgt.
19. Verwendung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten ge-
mäß Anspruch 1 in Lacken, Beschichtungen, Dichtstoffen und/oder Kleb-
stoffe.
20. Verwendung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten
gemäß Anspruch 1 für die Lackierung und/oder Beschichtung von Kunst-
stoffen.
21. Verwendung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten
gemäß Anspruch 1 für die Textil- und Lederbeschichtung.
22. Verwendung von Polyurethanlösungen mit Alkoxysilanstruktureinheiten ge-
mäß Anspruch 1 in wasserdampfdurchlässigen Textilbeschichtungen.



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PC 00/02484

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08G18/10 C08G18/12 C08G18/28 C09D175/04 C08G18/44

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08G C09D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 886 226 A (ASAI KIYOTSUGU ET AL) 27 May 1975 (1975-05-27) column 2, line 6 -column 4, line 15 examples 1,4; table 1 ---	1-3,7, 11,13, 18,19
X	US 4 582 873 A (GAA PETER C ET AL) 15 April 1986 (1986-04-15) column 3, line 34 -column 4, line 51 column 25, line 14 -column 27, line 45 example 1A ---	1-3,9, 13,19
A	GB 1 474 105 A (COMMW SCIENTIFIC IND RES ORG) 18 May 1977 (1977-05-18) page 3, line 24 -page 6, line 28 --- -/--	1,17,22



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

E earlier document but published on or after the international filing date

L document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 July 2000

Date of mailing of the international search report

04/08/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx: 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Neugebauer, U

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/02484

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES INC) 25 March 1998 (1998-03-25) page 2, line 5 -page 3, line 36 examples 1,6,7,17 -----</p>	<p>1,14,17, 19</p>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PC 00/02484

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3886226 A	27-05-1975	JP 908281 C	08-05-1978
		JP 48084899 A	10-11-1973
		JP 52012740 B	09-04-1977
		JP 1044734 C	30-04-1981
		JP 48097817 A	13-12-1973
		JP 55039587 B	13-10-1980
		JP 946268 C	30-03-1979
		JP 49078750 A	30-07-1974
		JP 53028945 B	17-08-1978
		CA 1015488 A	09-08-1977
		DE 2307794 A	23-08-1973
US 4582873 A	15-04-1986	CA 1248679 A	10-01-1989
		DE 3583822 A	26-09-1991
		EP 0163214 A	04-12-1985
		JP 1805897 C	26-11-1993
		JP 5007407 B	28-01-1993
		JP 60255817 A	17-12-1985
GB 1474105 A	18-05-1977	BE 814725 A	02-09-1974
		CH 626218 A,B	13-11-1981
		DE 2421888 A	05-12-1974
		ES 426099 A	01-07-1976
		FR 2228886 A	06-12-1974
		IT 1012187 B	10-03-1977
		JP 50046996 A	26-04-1975
		NL 7406182 A,B,	12-11-1974
		ZA 7402665 A	30-04-1975
EP 0831108 A	25-03-1998	BR 9704796 A	22-12-1998
		JP 10204144 A	04-08-1998
		US 6001946 A	14-12-1999



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern. Aktenzeichen

PCT/00/02484

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08G18/10 C08G18/12 C08G18/28 C09D175/04 C08G18/44

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08G C09D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 886 226 A (ASAI KIYOTSUGU ET AL) 27. Mai 1975 (1975-05-27) Spalte 2, Zeile 6 -Spalte 4, Zeile 15 Beispiele 1,4; Tabelle 1 ---	1-3,7, 11,13, 18,19
X	US 4 582 873 A (GAA PETER C ET AL) 15. April 1986 (1986-04-15) Spalte 3, Zeile 34 -Spalte 4, Zeile 51 Spalte 25, Zeile 14 -Spalte 27, Zeile 45 Beispiel 1A ---	1-3,9, 13,19
A	GB 1 474 105 A (COMMW SCIENTIFIC IND RES ORG) 18. Mai 1977 (1977-05-18) Seite 3, Zeile 24 -Seite 6, Zeile 28 --- -/--	1,17,22

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. Juli 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

04/08/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P. B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo.nl
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Neugebauer, U

INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02484

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES INC) 25. März 1998 (1998-03-25) Seite 2, Zeile 5 -Seite 3, Zeile 36 Beispiele 1,6,7,17 -----</p>	<p>1,14,17, 19</p>

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zu einer Patentfamilie gehören

Intern. Aktenzeichen

PCT/JP90/02484

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3886226 A	27-05-1975	JP 908281 C	08-05-1978
		JP 48084899 A	10-11-1973
		JP 52012740 B	09-04-1977
		JP 1044734 C	30-04-1981
		JP 48097817 A	13-12-1973
		JP 55039587 B	13-10-1980
		JP 946268 C	30-03-1979
		JP 49078750 A	30-07-1974
		JP 53028945 B	17-08-1978
		CA 1015488 A	09-08-1977
		DE 2307794 A	23-08-1973
US 4582873 A	15-04-1986	CA 1248679 A	10-01-1989
		DE 3583822 A	26-09-1991
		EP 0163214 A	04-12-1985
		JP 1805897 C	26-11-1993
		JP 5007407 B	28-01-1993
		JP 60255817 A	17-12-1985
GB 1474105 A	18-05-1977	BE 814725 A	02-09-1974
		CH 626218 A,B	13-11-1981
		DE 2421888 A	05-12-1974
		ES 426099 A	01-07-1976
		FR 2228886 A	06-12-1974
		IT 1012187 B	10-03-1977
		JP 50046996 A	26-04-1975
		NL 7406182 A,B,	12-11-1974
		ZA 7402665 A	30-04-1975
EP 0831108 A	25-03-1998	BR 9704796 A	22-12-1998
		JP 10204144 A	04-08-1998
		US 6001946 A	14-12-1999

